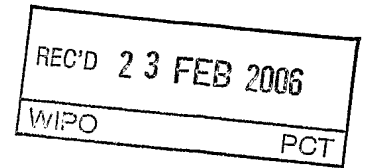


特許協力条約

PCT

特許性に関する国際予備報告（特許協力条約第二章）

（法第12条、法施行規則第56条）
〔PCT36条及びPCT規則70〕



| | | |
|---|------------------------------------|---------------------------|
| 出願人又は代理人 の書類記号 FP0330PCT | 今後の手続きについては、様式PCT/IPEA/416を参照すること。 | |
| 国際出願番号 PCT/J P 2005/004952 | 国際出願日 (日.月.年) 18.03.2005 | 優先日 (日.月.年) 22.03.2004 |
| 国際特許分類 (IPC) Int.Cl. C07F5/06 (2006.01), C08F4/642 (2006.01), C08F10/00 (2006.01) | | |
| 出願人 (氏名又は名称) 東ソー・ファインケム株式会社 | | |

| | |
|--|--|
| <p>1. この報告書は、PCT35条に基づきこの国際予備審査機関で作成された国際予備審査報告である。 法施行規則第57条（PCT36条）の規定に従い送付する。</p> <p>2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で <u>3</u> ページからなる。</p> <p>3. この報告には次の附属物件も添付されている。</p> <p>a. <input checked="" type="checkbox"/> 附属書類は全部で <u>3</u> ページである。</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 補正されて、この報告の基礎とされた及び／又はこの国際予備審査機関が認めた訂正を含む明細書、請求の範囲及び／又は図面の用紙（PCT規則70.16及び実施細則第607号参照）</p> <p><input type="checkbox"/> 第I欄4.及び補充欄に示したように、出願時における国際出願の開示の範囲を超えた補正を含むものとこの国際予備審査機関が認定した差替え用紙</p> <p>b. <input type="checkbox"/> 電子媒体は全部で _____（電子媒体の種類、数を示す）。 配列表に関する補充欄に示すように、電子形式による配列表又は配列表に関連するテーブルを含む。 （実施細則第802号参照）</p> | |
| <p>4. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 第I欄 国際予備審査報告の基礎</p> <p><input type="checkbox"/> 第II欄 優先権</p> <p><input type="checkbox"/> 第III欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成</p> <p><input type="checkbox"/> 第IV欄 発明の単一性の欠如</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 第V欄 PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明</p> <p><input type="checkbox"/> 第VI欄 ある種の引用文献</p> <p><input type="checkbox"/> 第VII欄 国際出願の不備</p> <p><input type="checkbox"/> 第VIII欄 国際出願に対する意見</p> | |

| | | |
|---|--|----------|
| 国際予備審査の請求書を受理した日 18.01.2006 | 国際予備審査報告を作成した日 08.02.2006 | |
| 名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 | 特許庁審査官 (権限のある職員) 山田 泰之 電話番号 03-3581-1101 内線 3443 | 4 H 8720 |

様式PCT/IPEA/409 (表紙) (2005年4月)

第 I 欄 報告の基礎

1. 言語に関し、この予備審査報告は以下のものを基礎とした。

- ☒ 出願時の言語による国際出願
- ☐ 出願時の言語から次の目的のための言語である _____ 語に翻訳された、この国際出願の翻訳文
- ☐ 国際調査 (PCT規則12.3(a)及び23.1(b))
- ☐ 国際公開 (PCT規則12.4(a))
- ☐ 国際予備審査 (PCT規則55.2(a)又は55.3(a))

2. この報告は下記の出願書類を基礎とした。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差替え用紙は、この報告において「出願時」とし、この報告に添付していない。)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書

第 1-4, 6-9, 11-24 _____ ページ、出願時に提出されたもの

第 5, 10 _____ ページ*, 18.01.2006 付けで国際予備審査機関が受理したもの

第 _____ ページ*, _____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☒ 請求の範囲

第 2, 3, 5-9 _____ 項、出願時に提出されたもの

第 _____ 項*, PCT19条の規定に基づき補正されたもの

第 1, 4 _____ 項*, 18.01.2006 付けで国際予備審査機関が受理したもの

第 _____ 項*, _____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☒ 図面

第 1 _____ ページ/図、出願時に提出されたもの

第 _____ ページ/図*, _____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

第 _____ ページ/図*, _____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☐ 配列表又は関連するテーブル

配列表に関する補充欄を参照すること。

3. ☐ 補正により、下記の書類が削除された。

- ☐ 明細書 第 _____ ページ
- ☐ 請求の範囲 第 _____ 項
- ☐ 図面 第 _____ ページ/図
- ☐ 配列表 (具体的に記載すること) _____
- ☐ 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること) _____

4. ☐ この報告は、補充欄に示したように、この報告に添付されかつ以下に示した補正が出願時における開示の範囲を超えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c))

- ☐ 明細書 第 _____ ページ
- ☐ 請求の範囲 第 _____ 項
- ☐ 図面 第 _____ ページ/図
- ☐ 配列表 (具体的に記載すること) _____
- ☐ 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること) _____

* 4. に該当する場合、その用紙に“superseded”と記入されることがある。

第Ⅴ欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条（PCT35条(2)）に定める見解、
それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

| | | | |
|----------------|-------|-------|---|
| 新規性 (N) | 請求の範囲 | 1 - 9 | 有 |
| | 請求の範囲 | | 無 |
| 進歩性 (IS) | 請求の範囲 | 4 - 9 | 有 |
| | 請求の範囲 | 1 - 3 | 無 |
| 産業上の利用可能性 (IA) | 請求の範囲 | 1 - 9 | 有 |
| | 請求の範囲 | | 無 |

2. 文献及び説明 (PCT規則 70.7)

文献 1 : WO 2003/022890 A1 (EXXON-MOBIL CHEMICAL PATENTS INC.) 2003.03.20

文献 1 には、トリメチルアルミニウムとポリメチルアルミノキサンを含有し、ポリメチルアルミノキサンに対するトリメチルアルミニウムの比を変更できる組成物が記載されている。

そして、変更の結果として得られる組成物において、ポリメチルアルミノキサンに対するトリメチルアルミニウムの比を、本発明中のモル分率で示した結果の比とすることは当業者が容易に想到できることにすぎない。

また、本発明中のポリメチルアルミノキサンは、異なる合成方法により得られたポリメチルアルミノキサンと比較して、特段その組成に差異があるものとはいえない。

ル基の炭化水素基を表し、 n は1～5の整数を表す。)

で表される脂肪族または芳香族カルボン酸であり、

(ii) 生成したポリメチルアルミノキサン調製物中に存在するメチル基の総モル数に対するトリメチルアルミニウムに由来するメチル基のモル分率が26mol%以下

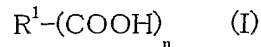
(iii) 生成したポリメチルアルミノキサン調製物の40℃における粘度が $2.1 \times 10^{-3} \text{Pa} \cdot \text{sec}$ 以下

であることを特徴とするポリメチルアルミノキサン調製物。

[0011] (2) 前記一般式(I)で表される含酸素有機化合物が安息香酸である(1)項に記載のポリメチルアルミノキサン調製物。

[0012] (3) 前記一般式(I)で表される含酸素有機化合物がトルイル酸である(1)項に記載のポリメチルアルミノキサン調製物。

[0013] (4) トリメチルアルミニウムと一般式(I)



(式中 R^1 は、 $\text{C}1 \sim \text{C}20$ の直鎖あるいは分岐したアルキル基、アルケニル基またはアール基の炭化水素基を表し、 n は1～5の整数を表す。)で表される含酸素有機化合物とを反応させてアルミニウム-酸素-炭素結合を有するアルキルアルミニウム化合物を形成し、該アルキルアルミニウム化合物を熱分解することを特徴とし、メチル基の総モル数に対するトリメチルアルミニウムに由来するメチル基のモル分率が26mol%以下で、40℃における粘度が $2.1 \times 10^{-3} \text{Pa} \cdot \text{sec}$ 以下であるポリメチルアルミノキサン調製物を製造する方法において、トリメチルアルミニウムのモル数と前記一般式(I)で表される含酸素化合物中の酸素のモル数の比が、1.25～

1.40:1の範囲にあることを特徴とするポリメチルアルミノキサン調製物の製造方法。

[0014] (5) 前記ポリメチルアルミノキサン調製物を製造する場合において、ルイス酸化合物の不存在下に熱分解することを特徴とする(4)項に記載のポリメチルアルミノキサン調製物の製造方法。

[0015] (6) 前記一般式(I)で表される含酸素有機化合物が、安息香酸である(4)項ないし(5)項のいずれか1項に記載のポリメチルアルミノキサン調製物の製造方法。

コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、安息香酸、フタル酸、クエン酸、酒石酸、乳酸、リンゴ酸、トルイル酸、などを挙げる事が出来る。この中で好ましいものは、酢酸、プロピオン酸、安息香酸、フタル酸、トルイル酸、マロン酸である。

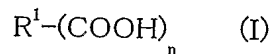
- [0039] ポリメチルアルミノキサン調製物の合成に用いるトリメチルアルミニウムと含酸素有機化合物の酸素原子のモル比は、ポリメチルアルミノキサンの用途により、またトリメチルアルミニウム残量の制御を目的として、任意に設定することができる。前記一般式(I)で示される含酸素有機化合物の酸素原子に対するトリメチルアルミニウムのモル量は、0.5 ~ 3.0 : 1の範囲で任意に設定することができる。好ましくは1.0 ~ 1.7 : 1の範囲であり、さらに好ましくは1.25 ~ 1.4 : 1の範囲である。
- [0040] トリメチルアルミニウムと含酸素有機化合物の酸素原子のモル比が1.25を下回る場合、ポリメチルアルミノキサン調製物の粘度が高くなり、保存安定性の著しい低下を示す。一方、トリメチルアルミニウムと含酸素有機化合物の酸素原子のモル比が1.40を上回る場合にはポリメチルアルミノキサン調製物の粘度が低く抑えられ、保存安定性が向上するが、オレフィン重合活性の顕著な低下を引起すため、オレフィン重合助触媒としての性能を損なってしまう。
- [0041] トリメチルアルミニウムと含酸素化合物の熱分解反応によって得られたポリメチルアルミノキサン調製物に存在するメチル基の総モル数に対するトリメチルアルミニウムに由来するメチル基のモル分率が26mol%を上回る場合、ポリメチルアルミノキサン調製物を用いたオレフィン重合における活性低下を引き起こすため、オレフィン重合助触媒としての性能を損なってしまう。
- [0042] ポリメチルアルミノキサン調製物の前駆体であるアルミニウム-酸素-炭素結合を有するアルミニウム化合物の熱分解温度は、- 10 ~ 200℃の間の任意の温度で実施することができる。好ましくは30℃~150℃であり、さらに好ましくは40℃~80℃である。
- [0043] ポリメチルアルミノキサン調製物の前駆体であるアルミニウム-酸素-炭素結合を有するアルミニウム熱分解化合物の反応速度は、ルイス酸の添加により促進されること

請求の範囲

[1](補正)トリメチルアルミニウムと含酸素有機化合物との反応により形成されるアルミニウム-酸素-炭素結合を有するアルキルアルミニウム化合物の熱分解反応により生成されるポリメ

チルアルミノキサン調製物において、

(i) トリメチルアルミニウムと反応する含酸素有機化合物が、一般式(I)



(式中 R^1 は、C1～C20の直鎖あるいは分岐したアルキル基、アルケニル基またはアリアル基の炭化水素基を表し、 n は1～5の整数を表す。)

で表される脂肪族または芳香族カルボン酸であり、

(ii) 生成したポリメチルアルミノキサン調製物中に存在するメチル基の総モル数に対するトリメチルアルミニウムに由来するメチル基のモル分率が26mol%以下

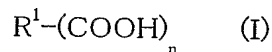
(iii) 生成したポリメチルアルミノキサン調製物の40℃における粘度が $2.1 \times 10^{-3} \text{Pa} \cdot \text{sec}$ 以下

であることを特徴とするポリメチルアルミノキサン調製物。

[2] 前記一般式(I)で表される含酸素有機化合物が安息香酸である請求項1に記載のポリメチルアルミノキサン調製物。

[3] 前記一般式(I)で表される含酸素有機化合物がトルイル酸である請求項1に記載のポリメチルアルミノキサン調製物。

[4](補正)トリメチルアルミニウムと一般式(I)



(式中 R^1 は、C1～C20の直鎖あるいは分岐したアルキル基、アルケニル基またはアリアル基の炭化水素基を表し、 n は1～5の整数を表す。)

で表される含酸素有機化合物とを反応させてアルミニウム-酸素-炭素結合を有するアルキルアルミニウム化合物を形成し、該アルキルアルミニウム化合物を熱分解することを特徴とし、メチル基の総モル数に対するトリメチルアルミニウムに由来するメチル基のモル分率が26mol%以下で、40℃における粘度が $2.1 \times 10^{-3} \text{Pa} \cdot \text{sec}$ 以下であるポリメチルアルミノキサン調製物を製造する方法であって、トリメチルアルミニウムのモル数